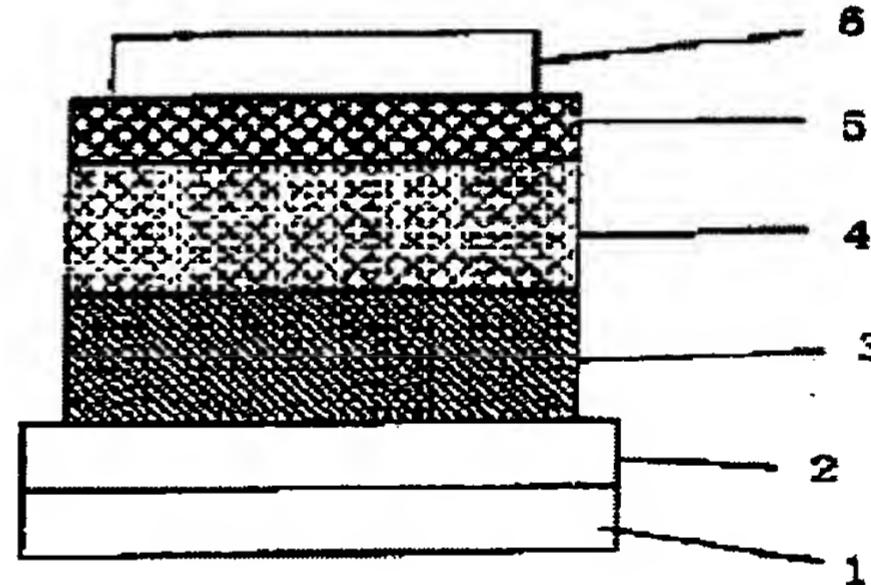


**ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT**

**Patent number:** JP11307264  
**Publication date:** 1999-11-05  
**Inventor:** FUKUYAMA MASAO; SUZUKI MUTSUMI; Hori YOSHIKAZU  
**Applicant:** MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD  
**Classification:**  
- international: H05B33/14; H05B33/22; H05B33/26; H05B33/14; H05B33/22;  
H05B33/26; (IPC1-7): H05B33/22; H05B33/14; H05B33/26  
- european:  
**Application number:** JP19980107595 19980417  
**Priority number(s):** JP19980107595 19980417

[Report a data error here](#)**Abstract of JP11307264**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an organic electroluminescent element having high luminescence efficiency and little luminance deterioration at the end of its driving life. **SOLUTION:** A buffer layer 5 provided in contact with a cathode 6 is an organic electroluminescent element containing non-organic compound and metal. Or, a buffer layer in contact with an anode is an organic electroluminescent element containing metal or oxidized non-organic compound. An organic electroluminescent element having high luminescence efficiency and little deterioration in brightness at the end of its driving life can be provided by this composition.



---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19)日本国特許庁 (JP)

(12)公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-307264

(43)公開日 平成11年(1999)11月5日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

H05B 33/22  
33/14  
33/26

識別記号

F I

H05B 33/22  
33/14  
33/26

Z  
A  
Z

審査請求 未請求 請求項の数 8 O.L (全5頁)

(21)出願番号

特願平10-107595

(22)出願日

平成10年(1998)4月17日

(71)出願人 000005821

松下電器産業株式会社  
大阪府門真市大字門真1006番地

(72)発明者 福山 正雄

神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1  
号 松下技研株式会社内

(72)発明者 鈴木 瞳美

神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1  
号 松下技研株式会社内

(72)発明者 堀 義和

神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1  
号 松下技研株式会社内

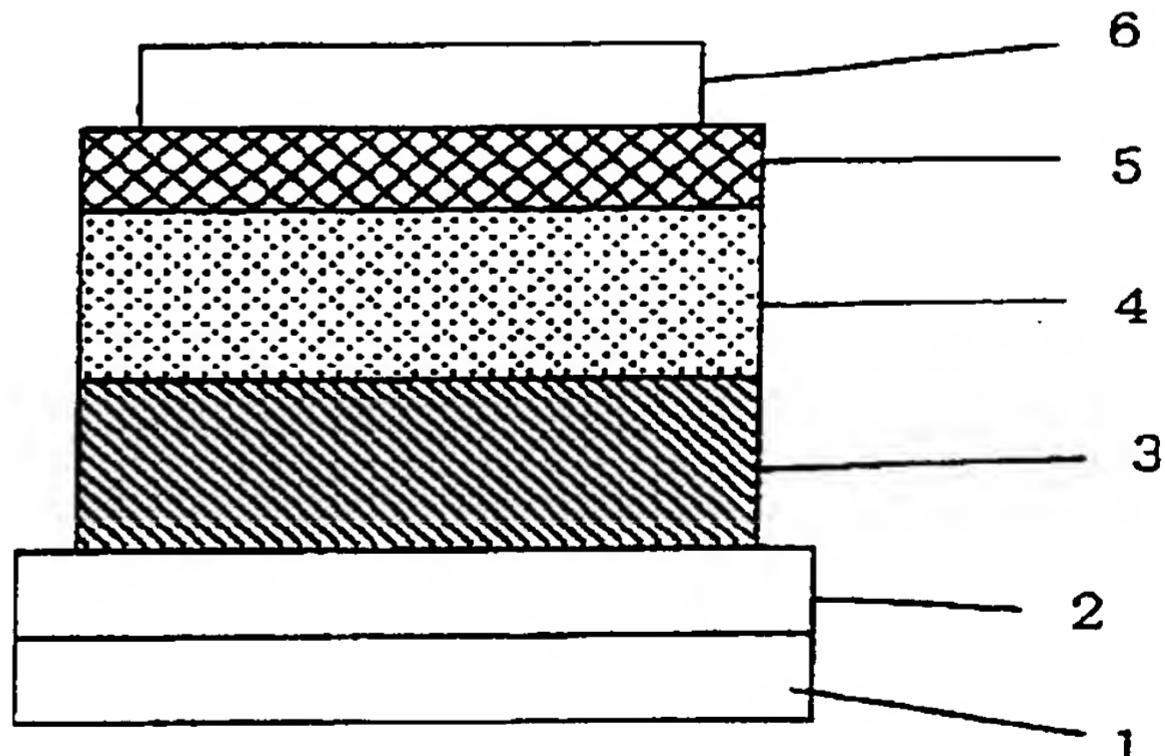
(74)代理人 弁理士 滝本 智之 (外1名)

(54)【発明の名称】有機電界発光素子

(57)【要約】

【課題】 発光効率が高く駆動寿命時の輝度の低下が小さい有機電界発光素子を提供することを目的とする。

【解決手段】 本発明は、陰極に接つて設けたバッファー層が、無機化合物と金属を含む有機電界発光素子である。または、陽極に接したバッファー層が金属または酸化性の無機化合物を含む有機電界発光素子である。このような構成によれば、発光効率が高く駆動寿命時の輝度の低下が小さい有機電界発光素子が提供される。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 一対の電極の間に有機層を有する有機電界発光素子であって、前記一対の電極の内の陰極に接して設けたバッファー層が、無機化合物と金属を含むものである有機電界発光素子。

【請求項2】 金属が還元性を有しているものである請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項3】 金属の仕事関数が4.0eV以下のものである請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項4】 陰極が、仕事関数が4.0eV以上の金属または無機化合物からなる請求項1から3のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項5】 一対の電極の間に有機層を有する有機電界発光素子であって、前記一対の電極の内の陽極に接して設けたバッファー層が、金属を含むものである有機電界発光素子。

【請求項6】 金属が仕事関数が4.0eV以上のものである請求項5記載の有機電界発光素子。

【請求項7】 一対の電極の間に有機層を有する有機電界発光素子であって、前記一対の電極の内の陽極に接して設けたバッファー層が、酸化性を有する無機化合物を含むものである有機電界発光素子。

【請求項8】 一対の電極が、いずれも可視光領域での光透過率が20%以上である請求項1から7のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、各種の表示装置として広範囲に利用される発光素子であって、特に低い駆動電圧、高輝度、安定性に優れた有機電界発光素子に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 電界発光素子は、自己発光のために液晶素子にくらべて明るく、鮮明な表示が可能であるため、旧来多くの研究者によって研究してきた。

【0003】 現在、実用レベルに達し商品化されている電界発光素子としては、無機材料のZnSを用いた素子がある。

【0004】 しかし、この様な無機の電界発光素子は発光のための駆動電圧として200V程度必要であるため、広く使用されるには至っていない。

【0005】 これに対して、有機材料を用いた電界発光素子である有機電界発光素子は、従来、実用的なレベルからはほど遠いものであったが、1987年にコダック社のC. W. Tangらによって開発された積層構造素子により、その特性が飛躍的に進歩した。(App. 1. Phys. Lett., 51巻, 913頁, 1987年)

彼らは、蒸着膜の構造が安定であって電子を輸送することのできる蛍光体と、正孔を輸送することのできる有機

物を積層し、両方のキャリヤーを蛍光体中に注入して発光させることに成功した。

【0006】 これによって、有機電界発光素子の発光効率が向上し、10V以下の電圧で1000cd/m<sup>2</sup>以上の発光が得られるようになった。

【0007】 この様な有機電界発光素子の基本的な発光特性は、非常に優れており、現在その実用化を妨げている最も大きな課題の一つは安定性の不足にある。具体的には、発光輝度が低下したり、ダークスポットと呼ばれる発光しない領域が発生したり、素子の短絡により破壊が起きてしまうことである。

【0008】 このような特性劣化の要因の一つに電極と有機層との界面の問題が考えられ、課題を解決のために陰極に接する有機層を改良することが検討されている。具体的には有機発光層と陰極の間に芳香族アミン化合物からなる界面層を設けたり(特開平6-267658号公報)、アルカリ金属化合物を含む電子注入層を設けること(特開平9-17574号公報)などが開示されているが、これらではまだ不十分である。

## 【0009】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、発光効率が高く駆動寿命時の輝度の低下が小さい有機電界発光素子を提供することを目的とする。

## 【0010】

【課題を解決するための手段】 本発明は、陰極に接して設けたバッファー層が、無機化合物と金属を含むものである有機電界発光素子である。または、陽極に接して設けたバッファー層が、金属または酸化性の無機化合物を含む有機電界発光素子である。このような構成によれば、発光効率が高く駆動寿命時の輝度の低下が小さい有機電界発光素子が提供される。

## 【0011】

【発明の実施の形態】 請求項1記載の本発明は、一対の電極の間に有機層を有する有機電界発光素子であって、前記一対の電極の内の陰極に接して設けたバッファー層が、無機化合物と金属を含むものである有機電界発光素子である。このようなバッファー層を設けると陰極からの電子注入が改善され発光効率が大幅に上昇する。

【0012】 このため、駆動時の輝度の低下を低減することが可能となる。ここで用いられる無機化合物としては、例えば酸化シリコン、酸化ゲルマニウム、酸化錫、酸化亜鉛などの酸化物、フッ化マグネシウム、フッ化カルシウムなどのフッ化物等が挙げられる。

【0013】 また、請求項2に記載のように金属としては還元性を有しているものであるとよい。具体的にはアルカリ金属、アルカリ土類金属、アルミニウム、亜鉛などの電気的陽性の大きい金属が挙げられる。

【0014】 また、請求項3に記載のように金属として仕事関数が4.0eV以下のものを用いるとよい。具体的にはアルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、

スカンジウム、イットリウム等があり、特に、Li、Mg、Ca、Sr等のアルカリ金属、アルカリ土類金属が好適である。

【0015】また、請求項4記載の発明は、陰極が、仕事関数が4.0eV以上の金属または無機化合物からなる有機電界発光素子である。通常、仕事関数が4.0eV以上の金属を用いると発光効率が低く、駆動寿命が非常に短いものになる。しかし、上記の構成の素子では仕事関数が4.0eV以上の安定な金属または無機化合物を陰極に用いても発光効率が高く、駆動寿命が長い素子が可能となる。

【0016】具体的にはアルミニウム、銀、銅、金、錫、インジウム、マンガン、ニッケル、白金、酸化インジウム、酸化錫などが挙げられる。

【0017】次に、請求項5記載の発明は、一対の電極の間に有機層を有する有機電界発光素子であって、前記一対の電極の内の陽極に接して設けたバッファー層が、金属を含む有機電界発光素子である。このようなバッファー層を設けると、陽極からの正孔注入が容易に起き発光効率、寿命特性の優れた素子が得られる。

【0018】さらに、請求項6に記載のように含有する金属は仕事関数が4.0eV以上であるとよい。具体的には、アルミニウム、銀、銅、金、錫、インジウム、マンガン、ニッケル、白金、などが挙げられる。

【0019】また、請求項7記載の発明は、一対の電極の間に有機層を有する有機電界発光素子であって、前記一対の電極の内の陽極に接して設けたバッファー層が、酸化性の無機化合物を含む有機電界発光素子である。酸化性の無機化合物としては、過マンガン酸化合物、クロム酸化合物、過酸化物、酸化性金属塩、酸化性酸化物などが挙げられる。

【0020】また、請求項8記載の発明は、一対の電極が、いずれも可視光領域での光透過率が20%以上である有機電界発光素子であり、発光効率が高く寿命特性の優れた透過型の発光素子が可能となる。電極としては具体的には透明電極であるITOや酸化錫のほかに金属の薄膜を用いることができる。

【0021】なお、上記バッファー層の形成方法としては真空蒸着法による方法が好適であるが、他の薄膜形成方法を用いてもよい。また、上記バッファー層の膜厚は非常に薄くても効果があり、0.1nm以上あればよい。

【0022】また、発光材としては各種の蛍光性金属錯体化合物、オキサゾール誘導体やスチリル誘導体などの蛍光性有機化合物、ポリパラフェニレンビニレンなどの蛍光性高分子化合物など各種の蛍光材料を用いることができる。

【0023】また、発光層にキナクリドン系化合物やクマリン系化合物、ルブレン、ペリレンなど縮合多環化合物などの各種蛍光材料をドーパントとして添加すること

によりさらに高効率、高輝度、高信頼性の有機電界発光素子を作製することができる。

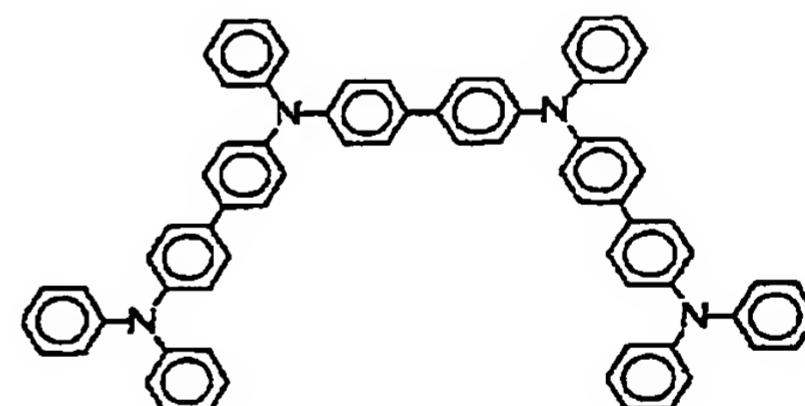
【0024】また本発明の素子構造としては、陰極または陽極に接してバッファー層が設けられていればどのようなものでもよく、バッファー層は陰極及び陽極の両方に用いても、片方のみに用いてもよい。陰極に接して設けたバッファー層のみを用いた場合の一例を示すと以下のようになる。また、通常は基板上に陽極から陰極の順に積層するが、これとは逆に基板上に陰極から陽極の順に積層してもよい。

【0025】陽極／発光層／バッファー層／陰極  
陽極／正孔輸送層／発光層／バッファー層／陰極  
陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／バッファー層／陰極  
陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／バッファー層／陰極  
陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／バッファー層／陰極

以下に、本発明を具体的な実施の形態により説明する。以下の実施の形態では、正孔輸送材として(化1)で示す無置換トリフェニルアミン四量体(TPT)を、発光材としてトリス(8-キノリノール)アルミニウム(以下Alqという。)を用い、陽極、正孔輸送層、発光層、陰極の順に積層した素子の構成を代表的に示すが、本発明はこの構成に限定されるものではもちろんない。

#### 【0026】

##### 【化1】



【0027】(実施の形態1) 本実施の形態の電界発光素子は、図1に示すように、ガラス基板1上に透明電極2としてITO電極をあらかじめ形成したものの上に、正孔輸送層3、発光層4、陰極バッファー層5、陰極6の順に蒸着して作製した構成を有する。

【0028】まず、十分に洗浄したガラス基板(ITO電極は成膜済み)、TPT、Alq、一酸化シリコン、アルミニウム及びリチウムを蒸着装置にセットした。

【0029】ついで、 $2 \times 10^{-6}$  torrまで排気した後、0.1nm/秒の速度でセットしたTPTを蒸着し正孔輸送層を50nm形成した。ついで、セットした発光材のAlqを0.1nm/秒の速度で蒸着し、膜厚25nmの発光層を形成した。次に、一酸化シリコンとリチウムを異なる蒸着源より蒸着し、一酸化シリコンとリチウムとからなる陰極バッファー層を5nm積層した。

その後、アルミニウムの蒸着を0.5 nm/秒の速度で行い、その厚さを150 nmとした。なお、これらの蒸着はいずれも真空を破らずに連続して行い、膜厚は水晶振動子によってモニターした。

【0030】そして、素子作製後、直ちに乾燥室素中で電極の取り出しを行い、引続き特性測定を行った。ここで、得られた素子の発光効率は、発光輝度500 cd/m<sup>2</sup>の場合の値で定義した。また、駆動寿命は初期輝度を1000 cd/m<sup>2</sup>として一定電流で駆動したときに、輝度が初期の半分の500 cd/m<sup>2</sup>になる間での時間で定義した。

【0031】その結果、本実施の形態においては、発光特性は1.51 m/W、駆動寿命は600時間であった。

10

【0032】一方、比較のために、陰極バッファー層を設けない以外は同様にして有機電界発光素子を作製し、特性を調べた。その結果、発光効率は0.31 m/W、駆動寿命は1時間以下であった。

【0033】以上より、本実施の形態の有機電界発光素子は、発光効率、駆動寿命が大幅に改善されていることが確認された。

【0034】(実施の形態2) 本実施の形態では、陰極バッファー層として(表1)に示した無機化合物と金属の混合膜を用いた以外は、実施の形態1と同様に有機電界発光素子を作製し、その特性を評価した。

【0035】その結果を、以下の(表1)に示す。

【0036】

【表1】

陰極バッファー層	発光効率 (lm/W)	駆動寿命 (時間)
—酸化シリコン+マグネシウム	1.4	550
—酸化シリコン+カルシウム	1.3	540
—酸化シリコン+アルミニウム	1.3	490
—酸化ゲルマニウム+リチウム	1.5	520
酸化亜鉛+リチウム	1.5	550
フッ化マグネシウム+リチウム	1.5	530

【0037】(表1)より、本実施の形態の有機電界発光素子は、発光効率、駆動寿命が大幅に改善されていることが確認された。

【0038】(実施の形態3) 本実施の形態の電界発光素子は、図2に示すように、ガラス基板1上に透明電極2としてITO電極をあらかじめ形成したものの上に、陽極バッファー層7、正孔輸送層3、発光層4、陰極6の順に蒸着して作製した構成を有する。

【0039】まず、十分に洗浄したガラス基板(ITO電極は成膜済み)、TPT、Alq、銀、アルミニウム及びリチウムを蒸着装置にセットした。

【0040】ついで、2×10<sup>-6</sup> torrまで排気した後、TPTと銀を異なる蒸着源より蒸着し、TPTと銀からなる陽極バッファー層7を5 nm積層した。次に0.1 nm/秒の速度でセットしたTPTを蒸着し正孔輸送層を50 nm形成した。ついで、セットした発光材のAlqを0.1 nm/秒の速度で蒸着し、膜厚25 nmの発光層を形成した。その後、アルミニウム(Al)とリチウム(Li)を異なる蒸着源より蒸着し、厚さ150 nmのAlLi陰極を形成した。なお、これらの蒸着はいずれも真空を破らずに連続して行い、膜厚は水晶振動子によってモニターした。

【0041】そして、素子作製後、直ちに乾燥室素中で

電極の取り出しを行い、引続き特性測定を行った。ここで、得られた素子の発光効率は、発光輝度500 cd/m<sup>2</sup>の場合の値で定義した。また、駆動寿命は初期輝度1000 cd/m<sup>2</sup>として一定電流で駆動したときに、輝度が初期の半分の500 cd/m<sup>2</sup>になる間での時間で定義した。

【0042】その結果、本実施の形態においては、発光特性は2.01 m/W、駆動寿命は1010時間であった。

【0043】一方、比較のために、陽極バッファー層を設けない以外は同様にして有機電界発光素子を作製し、特性を調べた。

【0044】その結果、発光効率は1.01 m/W、駆動寿命は500時間であった。以上より、本実施の形態の有機電界発光素子は、発光効率、駆動寿命が大幅に改善されていることが確認された。

【0045】(実施の形態4) 本実施の形態では、陽極バッファー層として(表2)に示した化合物を用いた以外は、実施の形態3と同様に有機電界発光素子を作製し、その特性を評価した。

【0046】その結果を、以下の(表2)に示す。

【0047】

【表2】

陽極バッファー層	発光効率 (lm/W)	駆動寿命 (時間)
TPT+アルミニウム	1.9	1100
TPT+インジウム	2.1	1040
—酸化シリコン+銀	1.8	990
フッ化マグネシウム+銀	1.9	920
TPT+—酸化銀	1.9	950
TPT+酸化バリウム	1.8	930

【0048】(表2)より、本実施の形態の有機電界発光素子は、発光効率、駆動寿命が大幅に改善されている

50

ことが確認された。

【0049】

【発明の効果】以上のように、本発明によれば、発光効率が高く駆動寿命時の輝度の低下が小さい有機電界発光素子が得られるという有利な効果が得られる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の実施の形態における有機電界発光素子の構成を示す図

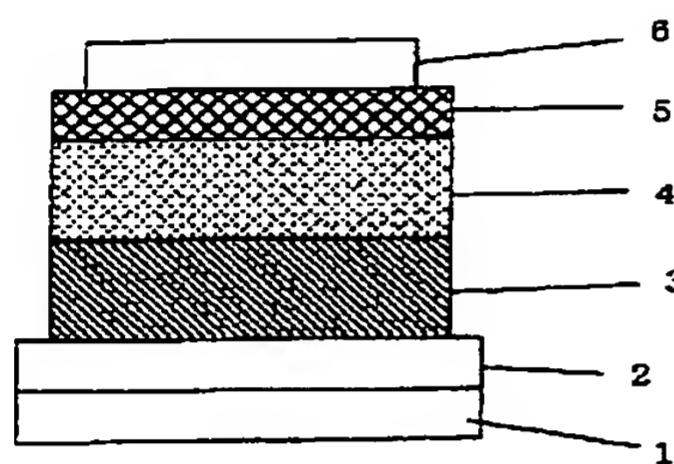
【図 2】本発明の実施の形態における有機電界発光素子

の構成を示す図

【符号の説明】

- 1 ガラス基板
- 2 透明電極
- 3 正孔輸送層
- 4 発光層
- 5 陰極バッファー層
- 6 陰極
- 7 陽極バッファー層

【図 1】



【図 2】

